

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 3 月 2 8 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 0 8 9 6 2 0
Application Number:

[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 0 8 9 6 2 0]

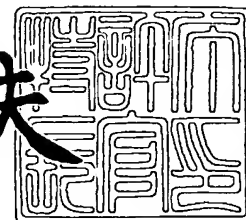
出 願 人 シチズン時計株式会社
Applicant(s):

Takaaki NOZAKI
QCM SENSOR AND QCM SENSOR DEVICE
March 29, 2004
Alan J. Kasper
(202) 293-7060
Q80586
2 of 2

2 0 0 4 年 2 月 1 8 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 P-26462

【提出日】 平成15年 3月28日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 G01N 5/02

【発明者】

【住所又は居所】 東京都西東京市田無町六丁目 1 番 1 2 号 シチズン時計
株式会社内

【氏名】 野崎 孝明

【特許出願人】

【識別番号】 000001960

【氏名又は名称】 シチズン時計株式会社

【代表者】 梅原 誠

【電話番号】 0424-68-4748

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003517

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 QCMセンサー装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電極を有する複数の圧電振動子で構成したセンサーと、前記電極に接続して前記圧電振動子の共振周波数の変化量を測定する共振周波数測定回路とを有し、前記共振周波数の変化量に基づいて前記圧電振動子の表面に吸着した物質の質量を測定する QCMセンサー装置において、前記複数の圧電振動子の前記電極は一括して前記共振周波数測定回路に接続されており、前記共振周波数測定回路は前記複数の圧電振動子それぞれの前記共振周波数を測定することを特徴とする QCMセンサー装置。

【請求項 2】 前記センサーは前記複数の圧電振動子の前記電極を一括して接続した共通端子を有しており、前記共振周波数測定回路を前記共通端子に接続したことを特徴とする請求項 1 記載の QCMセンサー装置。

【請求項 3】 前記電極は前記圧電振動子の表裏両面にそれぞれ配設され、前記共通端子は前記表面の前記電極と前記裏面の前記電極とを別々に一括して接続した 2 つの前記共通端子を有しており、前記共振周波数測定回路は前記 2 つの共通端子を介して前記圧電振動子の合成アドミッタンス又は合成インピーダンスの周波数依存性を計測することによって前記複数の圧電振動子の前記共振周波数を求めることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の QCMセンサー装置。

【請求項 4】 前記共振周波数測定回路は、前記複数の圧電振動子の前記共振周波数をカバーする範囲で周波数を掃引して前記複数の圧電振動子それぞれのインピーダンスまたはアドミッタンスを計測し、演算により合成アドミッタンス又は合成インピーダンスの等価回路定数を求めることにより、前記複数の圧電振動子それぞれの共振周波数を求めることを特徴とする請求項 3 に記載の QCMセンサー装置。

【請求項 5】 前記複数の圧電振動子は、同一振動子基板上に作られた複数の振動領域と、該振動領域を駆動するための電極を有することを特徴とする請求項 1 から請求項 4 のいずれか一つに記載の QCMセンサー装置。

【請求項 6】 前記センサーは共振周波数が異なる複数の前記圧電振動子を

有することを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか一つに記載の QCM センサー装置。

【請求項 7】 前記センサーは共振周波数がほぼ同一の複数の前記圧電振動子を有することを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか一つに記載の QCM センサー装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は、水晶振動子等の圧電振動子への微量な質量の付着により生じる圧電振動子の共振周波数の変化を検出することにより、付着した物質の質量を検出する質量測定装置、特に AT カット水晶振動子を利用した質量測定装置あるいは Quartz Crystal Microbalance センサー（以下 QCM センサー装置という。）において、圧電振動子を複数用いて同時に多数の試料を測定可能にしたマルチチャンネル QCM センサー装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

上記の QCM センサー装置の測定原理に関しては、共振周波数を f 、付着質量による共振周波数変化を Δf 、質量変化を Δm とすると、Sauerbrey の式（非特許文献 2 参照）に基づき

$$\Delta f = -K \cdot f^2 \cdot \Delta m \cdots (1)$$

（ただし、 K は水晶の材料の弾性定数、密度、および電極面積により決まる定数である。）で表される。

（1）式の関係を用いれば、質量付着の前後の AT カット水晶振動子の共振周波数の差 Δf を測定することにより、逆に、付着した質量 Δm を求めることができる。（1）式に示すように、測定される共振周波数の差 Δf は共振周波数 f の 2 乗に比例するので、共振周波数の高い圧電振動子を用いれば、単位質量当たりの周波数変化（ $\Delta f / \Delta m$ ）すなわち、検出感度の高い質量検出が原理的には可能となる。例えば、共振周波数 9 MHz の水晶振動子を用いると、1 ng の質量変化に対し 1 Hz 程度の周波数変化を生じることから、水晶振動子を発振回路で発

振させ、その出力を周波数カウンターで計測することで手軽にしかも高感度に質量変化が測定できる。応用例として、大気中で微量有毒成分を検出するガスセンサーや匂いセンサー、また近年は特に水中で圧電振動子を発振させる技術が進んだことにより、有機化合物や生体分子を対象物としたケミカルセンサーあるいはバイオセンサーとして注目を集めている（たとえば非特許文献 1 および 2 参照）。

【 0 0 0 3 】

さらに、近年、ヒトゲノムの解析に見られるように、非常に多くの試料を同時、高速に分析する手法が確立し、DNA 配列決定以外のバイオ分析装置に対しても、ハイスループット化の要望が高まっている。QCM センサー装置においても、プロテオミクス（蛋白質の網羅的解析）や創薬の分野において、多数の蛋白質間の相互作用を、すべての組み合わせにおいて分析する必要性が高まっており、マルチチャンネル化が望まれている。

【 0 0 0 4 】

従来の QCM センサー装置は 1 度に 1 試料を測定する装置が主流であったが、水晶振動子を搭載した測定セルを複数用意し、同時に複数の振動子の共振周波数を測定する計測回路を用意することで比較的容易にマルチチャンネル化することが可能である。

【 0 0 0 5 】

従来のマルチチャンネル QCM センサーとして、例えば、一枚の水晶基板 2 次元配列した複数の振動子の端子をマトリックス状に接続して、X 方向の配線と Y 方向の配線をリレー等のスイッチ回路で切り替え、選択された配線の交点の振動子のみを発振回路に接続することにより配線の数減らす工夫がなされている（例えば、特許文献 1）。

【 0 0 0 6 】

特許文献 1 の図 2 において、51 は 1 枚の水晶基板上に複数の振動領域を設けたマルチチャンネル QCM センサデバイスで、図中 A から I が作用電極を示し、個々の振動領域となっている。この振動領域の裏面には裏面電極が配設されており、作用電極は図中縦方向に共通接続し、端子 521、522、523 に接続さ

れ、一方裏面電極は横方向に共通接続し、端子531、532、533に接続されている。縦方向配線は切換スイッチ55で選択され、横方向配線は切換スイッチ56で選択され、選択された振動領域の作用電極と裏面電極が発振回路またはインピーダンス測定回路54に接続され共振周波数が測定される。制御部57は複数の圧電振動子領域から縦方向と横方向を指定し、一つの圧電振動子領域を選択するための回路である。

【0007】

【非特許文献1】

ACOUSTIC WAVE SENSORS、ACADEMIC PRESS (ISBN 0-12-077460-7) p307-308、Examples of Biochemical Acoustic Wave Sensors

【非特許文献2】

BUNSEKI KAGAKU Vol. 46、No. 12、pp. 917-930 (1997) : 臨床検査のためのラテックス圧電素子イムノアッセイと圧電素子バイオセンサーの開発 (918頁-929頁)

【特許文献1】

特開2000-338022号公報 (図3、段落0048から0051)

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

特許文献1に示す従来例においては、9個の圧電振動子領域において、全ての作用電極、裏面電極への配線を取り出すのに必要な配線数18本を、マトリックス状に配線を接続することにより、6本に減少させることが可能であるが、依然として6本の配線と2つの切換スイッチが必要である。さらに、特許文献1では、複数の圧電振動子領域から1つを選択して共振周波数を計測し、これを圧電振動子領域の数だけ繰り返す必要があるので、1計測点に要する時間が長くなる欠点を有している。とくに共振周波数を発振周波数で計測する場合、発振停止状態から発振が安定状態に達するまでにかなりの時間を要するため、計測に必要な時間が長くなる欠点が強調されてしまう。しかも切換スイッチの動作も加わるため、計測作業が煩雑になっていた。

【0009】

本発明は、上記した従来のマルチチャンネルQCMセンサー装置に必要な配線数をさらに減少させ、且つスイッチ回路を不要としたQCMセンサー装置を提供することを目的とする。

【0010】**【課題を解決するための手段】**

上記の課題を解決するためにその第1の手段として本発明は、電極を有する複数の圧電振動子で構成したセンサーと、電極に接続して圧電振動子の共振周波数の変化量を測定する共振周波数測定回路とを有し、共振周波数の変化量に基づいて圧電振動子の表面に吸着した物質の質量を測定するQCMセンサー装置において、複数の圧電振動子の電極は一括して共振周波数測定回路に接続されており、共振周波数測定回路は複数の圧電振動子それぞれの共振周波数を測定することを特徴とする。

【0011】

上記の課題を解決するためにその第2の手段として本発明は、前記センサーは前記複数の圧電振動子の前記電極を一括して接続した共通端子を有しており、前記共振周波数測定回路を前記共通端子に接続したことを特徴とする。

【0012】

上記の課題を解決するためにその第3の手段として本発明は、電極は圧電振動子の表裏両面にそれぞれ配設され、共通端子は表面の電極と裏面の電極とを別々に一括して接続した2つの共通端子を有しており、共振周波数測定回路は2つの共通端子を介して圧電振動子の合成アドミッタンス又は合成インピーダンスの周波数依存性を計測することによって複数の圧電振動子の共振周波数を求めることを特徴とする。

【0013】

上記の課題を解決するためにその第4の手段として本発明は、共振周波数測定回路は、複数の圧電振動子の共振共振周波数をカバーする範囲で周波数を掃引して複数の圧電振動子それぞれのインピーダンスまたはアドミッタンスを計測し、演算により合成アドミッタンス又は合成インピーダンスの等価回路定数を求める

ことにより、複数の圧電振動子それぞれの共振周波数を求めることを特徴とする。

【0014】

上記の課題を解決するためにその第5の手段として本発明は、複数の圧電振動子は、同一振動子基板上に作られた複数の振動領域と、振動領域を駆動するための電極を有することを特徴とする。

【0015】

上記の課題を解決するためにその第5の手段として本発明は、センサーは共振周波数が異なる複数の圧電振動子を有することを特徴とする。

【0016】

上記の課題を解決するためにその第5の手段として本発明は、センサーは共振周波数がほぼ同一の複数の圧電振動子を有することを特徴とする。

【0017】

【発明の実施の形態】

以下に、図面に基づいて本発明の第1実施形態を説明する。図1は第1実施形態に係わるQCMセンサー装置のセンサー部を示す図である。図2は第1実施形態に係わるQCMセンサー装置の構成を示す図である。センサー部1は圧電振動子である複数のATカット水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ から構成され、それぞれの水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ は相互に異なる共振周波数 f_{o1} 、 $f_{o2} \sim f_{oN}$ を有している。各水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ の電極から引き出された2本の端子は、全ての水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ と並列接続されて2つの共通端子TA、TBに一括して接続される。図1で説明したセンサー部1の共通端子TA、TBは、共振周波数測定回路を構成するアドミタンス計測手段2の測定端子に接続されている。センサー部1では複数の水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ が並列接続されているため、アドミタンス計測手段2では全ての水晶振動子 X_1 、 $X_2 \sim X_N$ の合成アドミタンスが計測される。測定されたアドミタンスデータ4は、次に情報処理部3に送られてそれぞれの共振周波数が演算により求められる。図10は、このようにして求めた4つの水晶振動子 $X_1 \sim X_4$ の共振周波数 $f_{o1} \sim f_{o4}$ がそれぞれ微小質量の付着によりの $\Delta f_1 \sim \Delta f_4$ だけ変化した様子

を横軸時間、縦軸周波数としてプロットしたものである。さらに情報処理部3では、予め求めておいた質量感度を用いて、共振周波数の変化を質量変化に換算する演算を行い、質量変化出力OUT1～OUTNに出力する。ここでアドミッタンス計測手段2としては、周波数をスイープ（掃引）しながらアドミッタンスを計測可能な装置であり、市販製品ではネットワークアナライザや、インピーダンスアナライザ等を用いることが可能である。情報処理部3は、アドミッタンス測定手段2で得られた周波数に対するアドミッタンスの変化から、各水晶振動子X1、X2～XNの共振回路の等価回路定数を、最小二乗法等を利用した演算処理で求め、さらに等価定数から共振周波数を演算で求めるための演算装置であり、GPIBインターフェイス等で接続されたパーソナルコンピュータ、あるいは専用ソフトを組み込んだCPU、あるいは専用ハードウェアなどで構成することが可能である。

【0018】

本実施形態では複数の水晶振動子X1、X2～XNの共振周波数を相互に異なる値にすることがポイントである。その共振周波数の設定は、液体溶液中における水晶振動子のQ値（Quality Factor）を考慮してある一定値以上の間隔が空くような値に設定する。一例として、水晶振動子の共振周波数が38MHzで、液体試料中でのQ値がおおよそ1000とすると、共振周波数の半値幅程度、すなわち共振周波数をQ値で割った値、 $38\text{MHz} / 1000 = 38\text{KHz}$ 程度離しておく。この例では、4つの水晶振動子の共振周波数が38.038MHz、38.076MHz、38.104MHz、38.142MHzになる。このような共振周波数に設定されたセンサー部1の等価回路とアドミッタンス特性を次に説明する。

【0019】

始めに、水晶振動子1個の場合の等価回路とアドミッタンス特性について説明する。図3は一つの水晶振動子の等価回路である。水晶振動子は、インダクタンス L_x 、容量 C_x 、抵抗 R_x からなる直列共振回路と、電極容量および電極に接続する配線容量からなる並列容量 C_p とからなる並列共振回路で表すことができる。この等価回路のアドミッタンス特性を図4に示す。図4において、横軸は周

周波数、縦軸はアドミッタンスの実数部 G を表す。共振周波数 f_o でアドミッタンスの実数部 G (コンダクタンス) が最大値 G_{max} となり、 G が半分に低下する周波数をそれぞれ f_1 、 f_2 とすると f_1 と f_2 の周波数差 f_w は f_o を Q 値で割った値に等しい。また、アドミッタンスの虚数部 B (サセプタンス) は周波数 f_1 で最大値 B_{max} を取り、 f_2 で最小値 B_{min} を取る。

【0020】

次に共振周波数を f_w 程度離れた 4 つの水晶振動子を並列接続した場合の等価回路とアドミッタンス特性を説明する。図 5 は 4 つの水晶振動子を並列接続した時の等価回路を示す。等価定数には水晶振動子 X_1 から X_4 に対応して L_{x1} から L_{x4} 、 C_{x1} から C_{x4} 、 R_{x1} から R_{x4} 、 C_{p1} から C_{p4} の値を有している。図 6 はこの等価回路のアドミッタンス特性で、横軸は周波数、縦軸はアドミッタンスの実数部 G を表す。実線で示すカーブがコンダクタンス、点線がサセプタンスである。カーブ G_1 、 B_1 が水晶振動子 X_1 の単体での共振特性で、同様に G_2 から G_4 、 B_2 から B_4 が水晶振動子 X_2 から X_4 に対応する。水晶振動子を並列接続した場合、合成アドミッタンスは各水晶振動子 X_1 から X_4 の加算で求められる。合成コンダクタンスはカーブ G に示すように 4 つの山が繋がった形状を示す。一方、サセプタンスはカーブ B の如く f_{o1} 付近で最大値となり、 f_{o4} にかけて上下しながら f_{o4} で最小値を取る形状をしめす。共振周波数を f_w (38 KHz) 程度離してあるため、4 つの水晶振動子 X_1 から X_4 のコンダクタンス G のピークは互いに分離される。従って、最小二乗法を用いて図 5 に示した等価回路の全素子定数を求めることができる。

【0021】

アドミッタンス計測手段 2 は、4 つの水晶振動子 X_1 から X_4 の共振周波数を f_w 程度の余裕を持ってカバーするような範囲で周波数をスイープ (掃引) し、前述した図 6 に示すようなアドミッタンス特性を計測する。周波数範囲はここでは、連続的な一つの周波数領域でスイープしたが、もちろん個別の水晶振動子の共振周波数に対応して、周波数領域が離れていても構わない。また、本実施形態では共振周波数測定回路であるて計測手段でアドミッタンスを計測したが、本発明はこれに限定されるものではなく、アドミッタンス測定でもインピーダンス測

定でも、数学的に演算を施すことで全ての等価回路定数を求めることが可能である。

【0022】

本実施形態においては、複数の水晶振動子の共振周波数の間隔 f_w を狭くすれば、より多くの水晶振動子を同時に計測可能であるが、周波数間隔が狭くなると、アドミッタンス特性上、共振カーブが重なってしまい、分離することが困難になってくる。周波数間隔 f_w の最小値 f_{wmin} は、アドミッタンス特性から共振周波数を求める計算方法や、共振周波数の変化幅により異なってくるが、一般には半値幅程度の間隔があれば容易に分離可能である。さらに半値幅の10分の1程度までは計算方法の工夫により充分に分離可能である。複数水晶振動子のQ値がお互いに異なっていれば、同一の場合よりもさらに狭くすることが可能である。結局、複数水晶振動子の周波数間隔 f_w は、共振周波数の変化量を見込んで、変化後でも最小値 f_{wmin} よりも広くなるように設定しておくことが望ましい。

【0023】

情報処理部3においては、アドミッタンス計測手段2で得られた各共振周波数に対するアドミッタンス特性から、全水晶振動子を並列接続した時の等価回路定数を最小二乗法等の数学的手法により推定し、ここで選られた等価定数から4つの水晶振動子の共振周波数を独立して計算することができる。等価定数を求めずに、直接共振周波数をもとめてもよいが、等価定数に一度変換しておけばQ値なども容易に計算することが可能となり、QCMセンサー装置としての分析能力が高くなる。

【0024】

図7は本実施形態に示したセンサー部1の具体的な構成である、マルチチャンネルQCMセンサー装置のセンサー部である。図8は図7で説明した水晶振動子の実装構造を示す断面図である。4つの水晶振動子X1からX4を搭載した基板5の上に、厚さ10mmの亚克力製ブロック6を接着してある。この亚克力製ブロック6には水晶振動子X1からX4の位置に合わせて、直径6mm程度の穴が開けられており、この試料穴6a1～6a4が液体試料を保持するウエルと

して機能する。それぞれの試料穴 6 a 1 ~ 6 a 4 の底面には水晶振動子 X 1 から X 4 が位置し、試料穴 6 a 1 ~ 6 a 4 に導入した液体試料中に含まれる検出対象物質を、水晶振動子 X 1 から X 4 の表面電極 9 a に形成したセンサー膜（図示せず）に付着させて検出を行う。

【0 0 2 5】

基板 5 の表面には金属配線パターンが形成されている。水晶振動子 X 1 から X 4 は金属配線パターンで出来たパッド 1 0、1 1 の上に導電性接着剤、あるいは ACF（異方導電フィルム）を用いて接着および導通をとる。水晶振動子 X 1 から X 4 の裏面電極 9 b に対向する基板 5 には空気穴 7 を空けて、水晶振動子 X 1 から X 4 の振動面が基板 5 に触れない様にしてある。パッド 1 0 は水晶振動子の表面電極 9 a、裏面電極 9 b と電氣的接続を取るための接続パッドである。パッド 1 1 は水晶振動子の高さを調整するためのダミーパッドであり、表面電極 9 a、裏面電極 9 b は接触しないようになっている。パッド 1 0 は金属配線パターン 1 3 を通じて共通端子 T A、あるいは T B に接続される。導電性接着剤を用いた場合は、パッド 1 0、1 1 の周りをシリコン樹脂等でシールして、液体試料との電氣的絶縁を保つようにする必要がある。

【0 0 2 6】

図 9 は水晶振動子の構造を示している。図 9（a）は水晶振動子の表面（液体に触れる側）、図 9（b）は水晶振動子の裏面、図 9（c）は矢印で示した側の側面図である。水晶振動子は水晶基板 2 0 の表面に形成した表面電極 9 a および裏面電極 9 b より構成される。表面電極 9 a は、斜めの取り出し配線 9 c を介して裏面の接続パッド P A に接続されている。裏面電極 9 b は斜めの取り出し配線 9 d を介してやはり裏面の接続部 P B に接続されている。接続部パッド P A、P B は図 8 のパッド 1 0 に接続される。裏面電極 B は表面側に回り込んでいない。つまり、液体試料に触れるのは表面電極 9 a のみとなるような構造とすることで、液体試料による表面電極 9 a と裏面電極 9 b 間の短絡を防いでいる。図 1 0 中の点線 2 1 は、基板と接着する領域を示し、点線より外周部で基板と接着されている。

【0 0 2 7】

以上、図 8、9、10 で説明したセンサー部を図 3 ですでに説明したようにアドミッタンス計測手段と情報処理部に接続して計測を行う。アドミッタンス計測手段には Agilent 社のネットワークアナライザー E5100A を用い、情報処理部には GPIB インターフェイルで接続したパーソナルコンピュータを用いた。図 10 は、このようにして求めた 4 つの水晶振動子 X1~X4 の共振周波数 $f_{o1} \sim f_{o4}$ がそれぞれ微小質量の付着によりの変化した様子を横軸時間、縦軸周波数としてプロットしたものである。液体溶液試料を保持する 4 つのウェル（試料穴 6a1~6a4）にバッファー溶液として生理食塩水等を導入してから、4 つの水晶振動子 X1~X4 の共振周波数を計測し、安定するのを待つ。安定したところで、時刻 T1 で被測定試料を含む試料溶液を試料穴 6a1 に導入して、水晶振動子 X1 の共振周波数の変化を計測する。以降、時刻 T2~T4 で順次、異なる試料溶液を試料穴 6a2~6a4 に導入して、水晶振動子 X2~X4 の共振周波数の変化を計測する。このようにして求めた 4 つの周波数変化は、さらに予め求めておいた質量感度を用いて、周波数変化を質量変化に換算する演算を行い、パーソナルコンピュータのディスプレイ画面上に、質量変化の時間変化を示すグラフを表示する。ここでは、4 つの試料を時間をずらして導入したがもちろん、同時に導入しても構わない。

【0028】

つぎに、本発明の第 2 実施形態を説明する。第 2 実施形態において、第 1 の実施形態と異なるのは、複数の水晶振動子の共振周波数の設定のみであり、その事について説明を行う。第 2 実施形態では、複数の水晶振動子 X1~X4 の共振周波数を、ほぼ同一にしておくことがポイントである。例えば 4 チャンネルの QCM センサー装置において、4 つの水晶振動子 X1~X4 の共振周波数に、すべて 8.000 MHz 近傍のものをを用いる。このような設定の QCM センサー装置で測定した場合の 4 チャンネル分の共振周波数の変化を図 11 に示す。液体溶液試料を保持する 4 つのウェル（試料穴 6a1~6a4）にバッファー溶液として生理食塩水等を導入してから、4 つの水晶振動子 X1~X4 の共振周波数が安定するのを待つ。共振周波数を一致させてあるので、共振を分離することが出来ないが、もともと共振周波数が一致しているので分離する必要は無い。共振周波数が図 1

1 中に示す f_0 で安定したところで、時刻 T_1 で被測定試料を含む試料溶液を試料穴 6 a 1 に導入すると、水晶振動子 X 1 の共振周波数 f_1 が変化する。共振周波数 f_1 が f_0 から変化すればアドミタンス特性上、2 つの共振に分離可能となり、以降、共振周波数 f_1 の変化が計測可能となる。以降、時刻 $T_2 \sim T_4$ で順次、異なる試料溶液を穴 6 a 2 \sim 6 a 4 に導入していけば、その都度、共振の分離が可能となり、水晶振動子 X 1 \sim X 4 に対応した共振周波数 $f_1 \sim f_4$ の変化を計測することが可能となる。試料を滴下する時間に差をつけることで、共振周波数 $f_1 \sim f_4$ がどの水晶振動子 X 1 \sim X 4 に対応しているかは明らかである。このようにして、もともと共振周波数の変化 $\Delta f_1 \sim \Delta f_4$ から、さらに予め求めておいた質量感度を用いて、周波数変化を質量変化に換算する演算を行い、パーソナルコンピュータのディスプレイ画面上に、質量変化の時間変化を示すグラフを表示する。

【0029】

図 1 1 の A で示すように、共振周波数 f_2 と f_3 がクロスするようなことがあっても、クロスする近傍では、2 つの共振を分離できないが、その前後では分離可能であり、共振周波数の全体の変化を見れば、クロスしたことを容易に認識できる。また、図 1 1 の B で示すように共振周波数 f_2 と f_4 が一致したような場合は、共振点の分離が出来なくなるが、もともと一致したからであって分離の必要は無く、水晶振動子 X 2 と X 4 の周波数変化 Δf_2 と Δf_4 は等しい。このように複数の水晶振動子の共振周波数を一致させておいても、それぞれの水晶振動子の共振周波数の変化を計測することが可能である。本実施形態においては、共振周波数の測定精度は、共振の分離性能に依存するが、アドミタンス特性から水晶振動子の等価定数を求める演算方法を工夫することにより、精度を向上させることが容易に可能である。本実施形態によれば、水晶振動子の共振周波数は同一のものをを用いればよいので、共振周波数が異なる複数の水晶振動子を用意する必要が無く、コスト低減に効果がある。さらに、水晶振動子の製造過程において周波数調整工程を省略した場合は、個々の水晶振動子の共振周波数がばらつくことになるが、ばらついた場合でも、測定精度の範囲で共振周波数を分離できるので、測定精度が許容される範囲において応用することが可能である。この場合、

周波数調整工程が不要となりコスト低減により大きな効果がある。

【0030】

つぎに、本発明の第3実施形態を図12に基づいて説明する。第3実施形態において、第1あるいは第2実施形態と異なるのはセンサー部1の構成である。第3実施形態のセンサー部を図12aおよび図12bを用いて説明する。1枚の水晶基板20上に4つの振動領域23a1～23a4を設け、それぞれの振動領域23a1～23a4を駆動するための電極を振動子の表面、および裏面に設けることで、水晶基板上に4つの水晶振動子X1～X4を形成してある。水晶振動子X1～X4のそれぞれの表面電極と裏面電極はそれぞれ、水晶基板上の共通端子22aおよび22bにより一括接続し、接続パッドPA、およびPBを通して、アドミッタンス測定手段2に接続されている。また液体試料溶液を支持する穴、あるいはウェルを形成する代わりに、図12bに示すように、水晶振動子X1からX4上に滴下した液体試料24a1～24a4を、水晶基板の表面張力を利用して保持する方式を用いることも可能である。この場合、意識的に水晶基板表面を疎水処理することで試料保持がより確実になる。

【0031】

以上に説明した実施形態においては、水晶振動子X1～X4は直線状に配置したが、マトリックス状に配置しても構わない。また、複数振動子の電極表面に形成するセンサー膜は同一のものでもよいし、それぞれ別々の目的物質を吸着するセンサー膜を形成してもよい。

【0032】

なお、上記各実施形態では、複数の水晶振動子の電極をセンサー部側で一括に共通接続して共通端子を形成していたが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば、共振周波数測定回路側で一括に共通接続しても良い。

【0033】

【発明の効果】

以上に説明したように本発明によれば、マルチチャンネルQCMセンサー装置において、圧電振動子とアドミッタンス計測手段とを接続する配線の数を増やすことなく、また圧電振動子を切替えるためのスイッチ回路を用いることなく、1

台のアドミッタンス計測手段において1回のスイープで得たアドミッタンス特性から、複数の振動子の共振周波数を取得することが可能である。従って、1チャンネルQCMセンサーと同じシステム構成、コストでマルチチャンネルQCMを実現することが可能である。その際、共振周波数の変化だけでなく、試料溶液の粘度変化を反映するQ値の変化も同時に取得することも可能である。とくに第2実施形態によれば、周波数調整工程を省略した水晶振動子を用いることが可能となり、コスト低減の効果が大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の実施形態に係るQCMセンサー装置のセンサー部の構成を示す図である。

【図2】

本発明の実施形態に係るQCMセンサー装置の構成を示す図である。

【図3】

水晶振動子の等価回路を示す図である。

【図4】

水晶振動子のアドミッタンス特性を示す図である。

【図5】

複数の水晶振動子を並列接続した時の等価回路を示す図である。

【図6】

複数の水晶振動子を並列接続した時のアドミッタンス特性を示す図である。

【図7】

本発明の実施例に係るQCMセンサー装置のセンサー部の構成を示す図である。

【図8】

センサー部の水晶振動子の実装方法を示す図である。

【図9】

センサー部の水晶振動子を示す図である。

【図10】

本発明の第 1 実施形態に係る QCM センサー装置による測定結果を示す図である。

【図 1 1】

本発明の第 2 実施形態に係る QCM センサー装置による測定結果を示す図である。

【図 1 2】

本発明の第 3 実施形態に係る QCM センサー装置のセンサー部の構成を示す図である。

【符号の説明】

- 1 センサー部
- 2 アドミッタンス計測手段
- 3 情報処理部
- 5 基板
- 6 アクリル製ブロック
- 6 a 1、6 a 2、6 a 3、6 a 4 試料穴
- 7 空気穴
- 8 水晶振動子
- 9 a 表面電極
- 9 b 裏面電極
- 9 c、9 d 取り出し配線
- 1 0 接続パッド
- 1 1 ダミーパッド
- 1 2 接着剤
- 1 3 金属配線パターン
- 2 0 水晶基板
- 2 1 接着領域を示す境界
- 2 2 a、2 2 b 共通端子
- 2 3 a 1、2 3 a 2、2 3 a 3、2 3 a 4 振動領域
- 2 4 a 1、2 4 a 2、2 4 a 3、2 4 a 4 液体試料

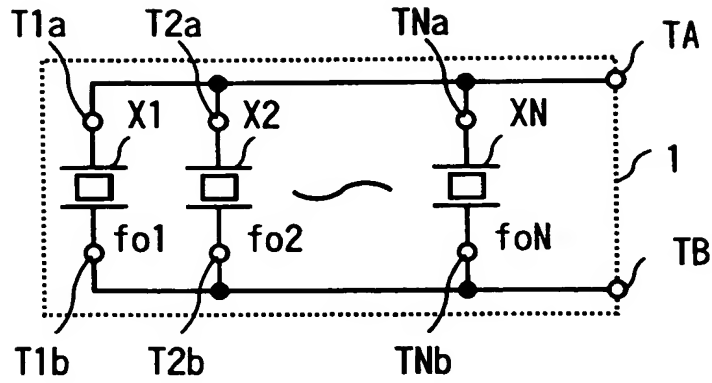
X 1、X 2、X 3、X 4 水晶振動子

T A、T B 接続端子

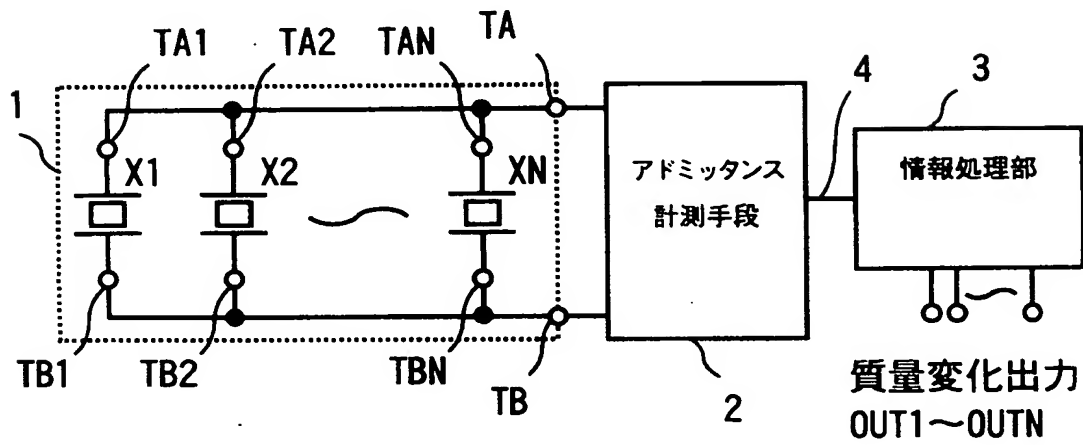
P A、P B 接続パッド

【書類名】 図面

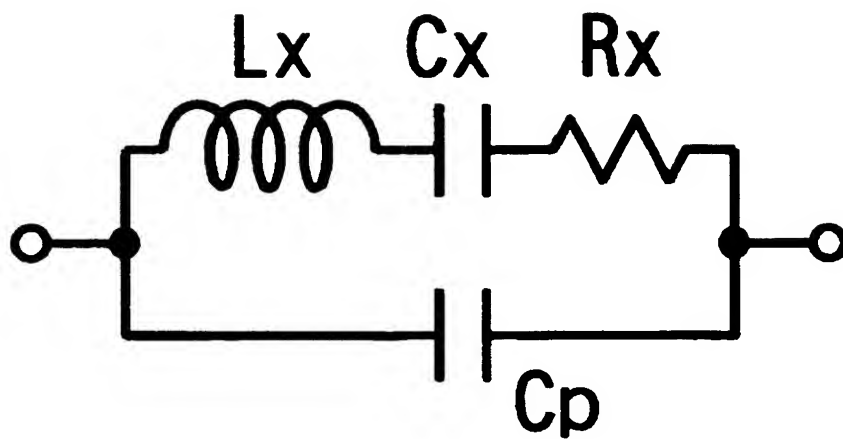
【図 1】



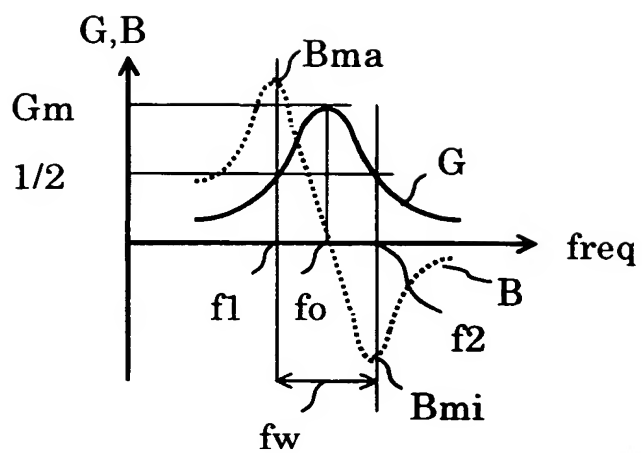
【図 2】



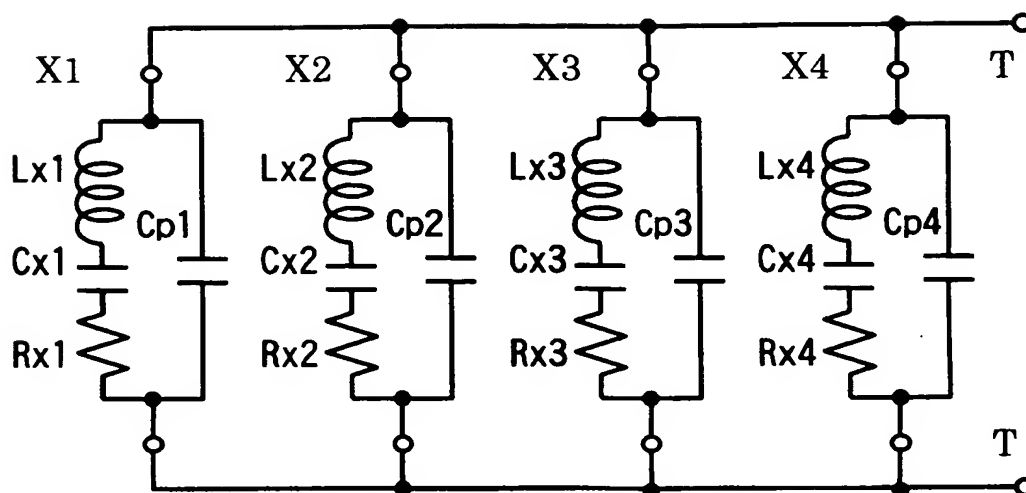
【図 3】



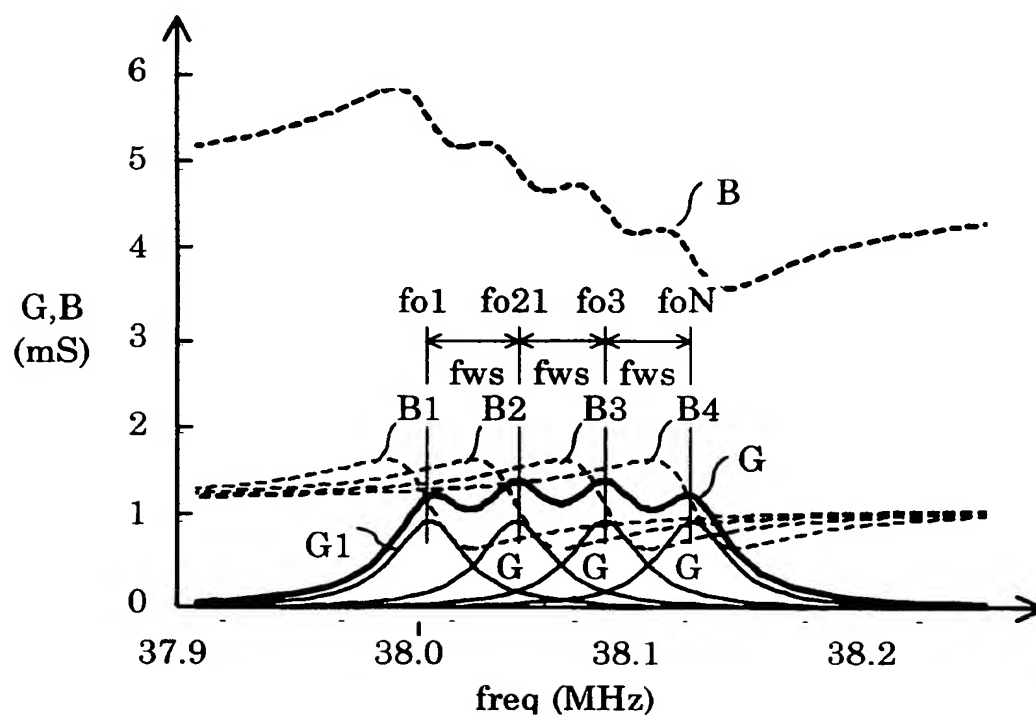
【図 4】



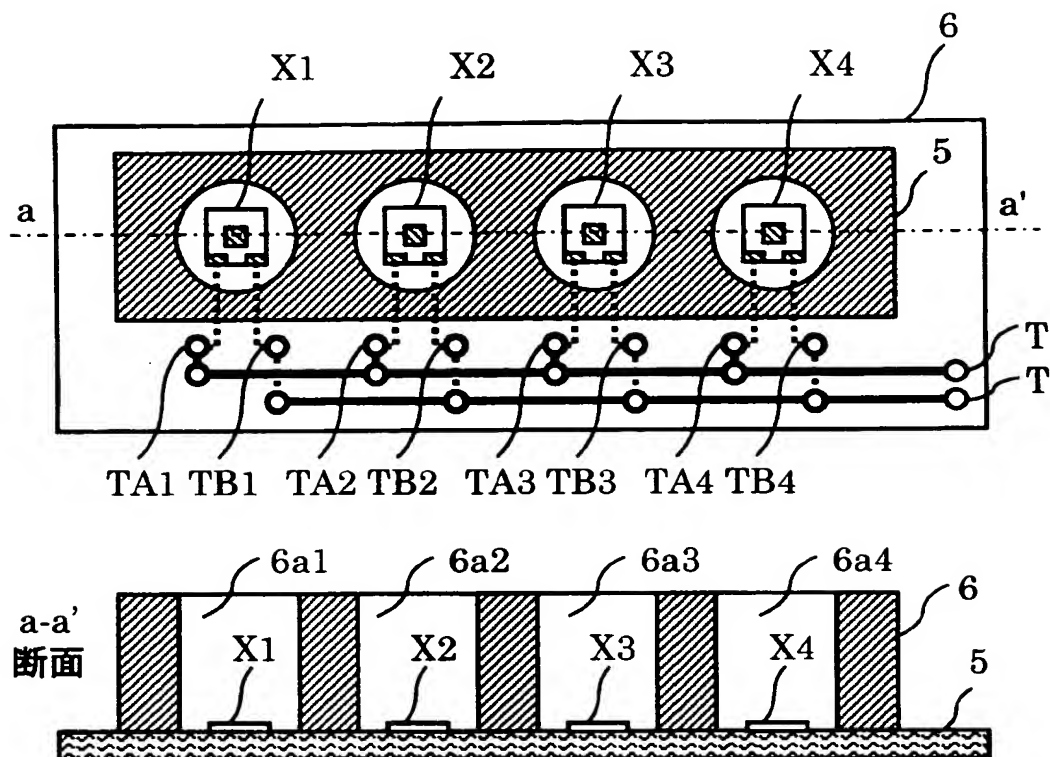
【図 5】



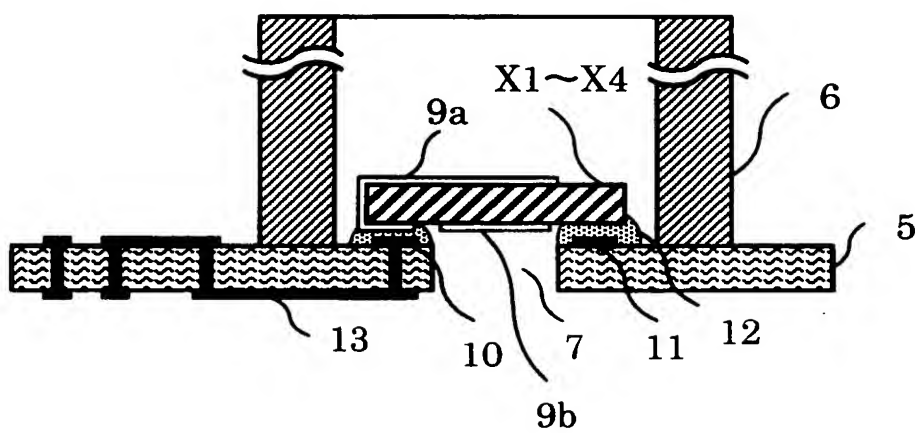
【図 6】



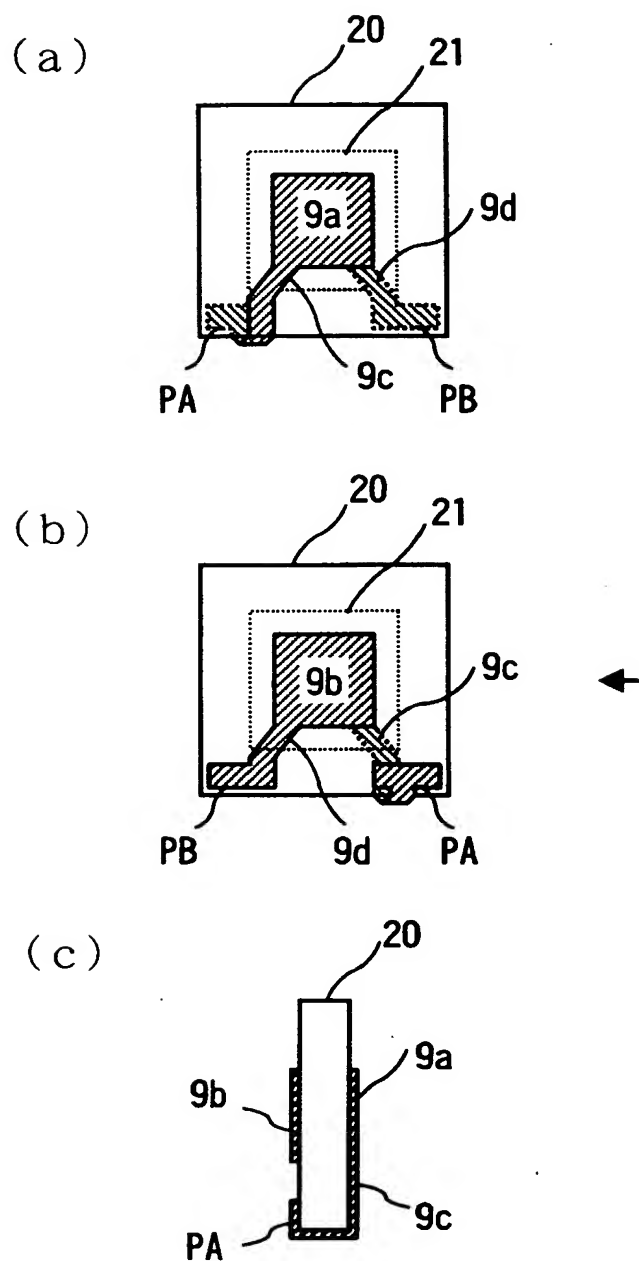
【図 7】



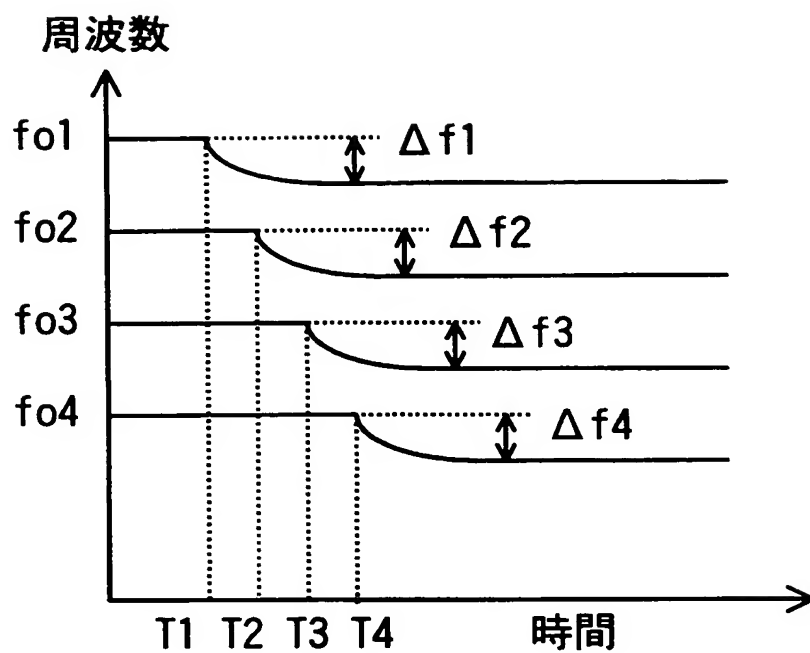
【図 8】



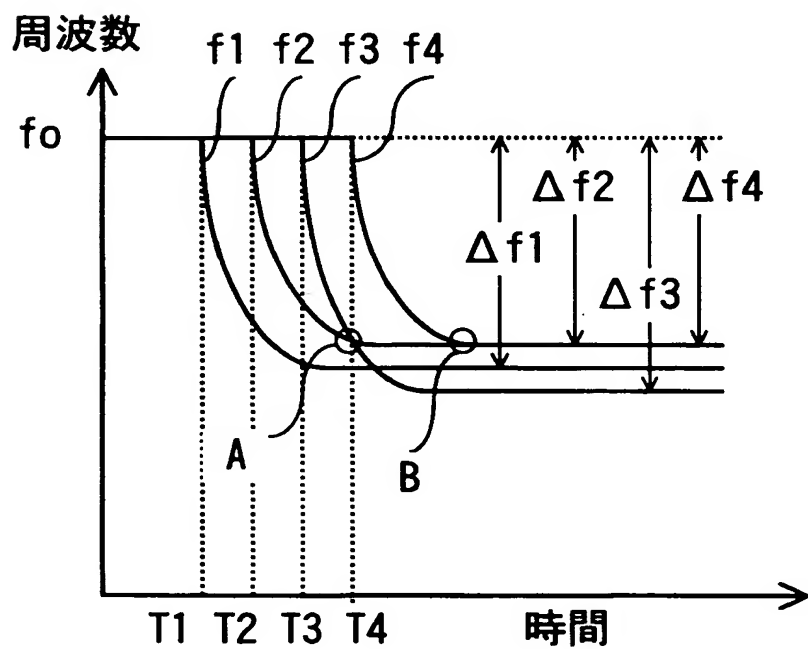
【図 9】



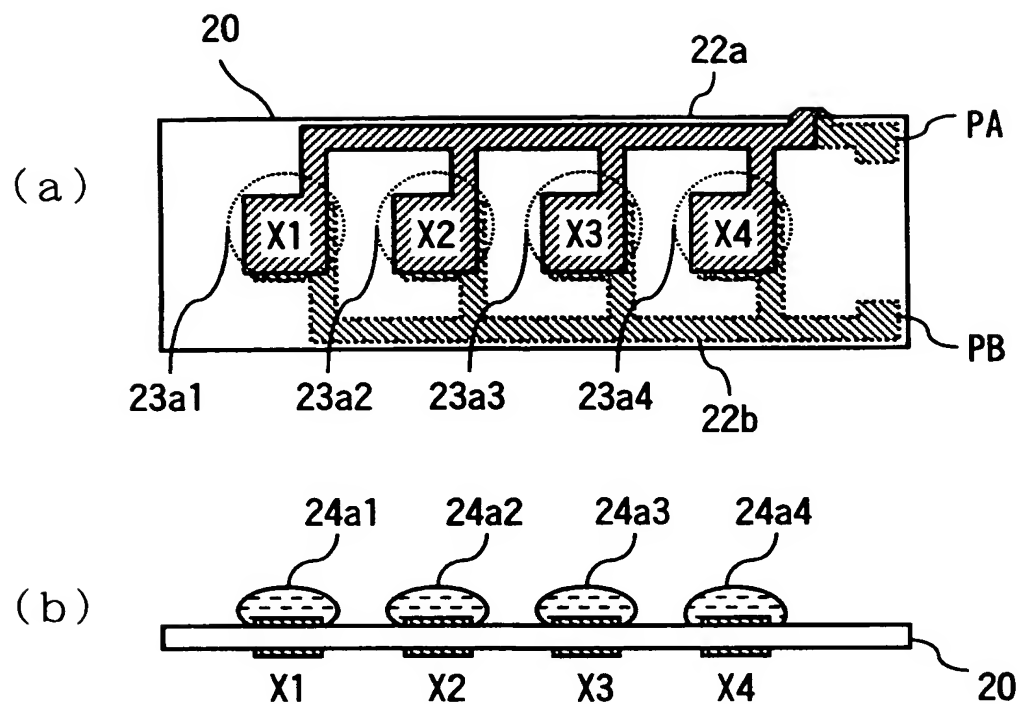
【図 10】



【図 11】



【図 12】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 マルチチャンネルQCMセンサー装置において、複数の振動子と共振周波数測定するためのアドミッタンス計測手段とを接続するための配線数を削減し、複数の共振周波数の計測を容易に行うことを課題とする。

【解決手段】 マルチチャンネルQCMセンサー装置を構成する複数の水晶振動子の共振周波数を、相互に異なる周波数とし、複数の振動子を並列接続して、その合成アドミッタンスをアドミッタンス計測手段で計測して、その合成アドミッタンス特性から、複数の水晶振動子の全ての等価回路乗数を最小最小二乗法で求めて、共振周波数変化を求め、圧電振動子に吸着した物質の質量を計測する。

【選択図】 図1

特願 2 0 0 3 - 0 8 9 6 2 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 1 9 6 0]

1. 変更年月日

2 0 0 1 年 3 月 1 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都西東京市田無町六丁目 1 番 1 2 号

氏 名

シチズン時計株式会社